

Fundamental Analysis on Coagulation Rate of Aerosol Generated from Industry Considering London-van der Waals Force

著者	白 皓
号	50
学位授与番号	3588
URL	http://hdl.handle.net/10097/37256

氏 名	白 皓
授 与 学 位	博士 (工学)
学 位 授 与 年 月 日	平成18年3月24日
学 位 授 与 の 根 拠 法 規	学位規則第4条第1項
研究科, 専攻の名称	東北大学大学院工学研究科 (博士課程) 金属工学専攻
学 位 論 文 題 目	Fundamental Analysis on Coagulation Rate of Aerosol Generated from Industry Considering London-van der Waals Force (工業起源エアロゾルのロンドン-ファンデルワールス力を考慮した凝集速度に関する基礎的解析)
指 導 教 員	東北大学教授 谷口 尚司 (環境科学研究科)
論 文 審 査 委 員	主査 東北大学教授 谷口 尚司 (環境科学研究科) 東北大学教授 長坂 徹也 (環境科学研究科) 東北大学教授 北村 信也 東北大学助教授 セルゲイ コマロフ (多元物質科学研究所)

論 文 内 容 要 旨

In industry, a lot of dust is generated annually and collection of it has been a tough task because any dust removing facility has a lower efficiency in fine fraction of the dust. In this study, based on the investigation of the features of EAF dust, one possible way was proposed that aerosol coagulation can make the fine particles form large particles. In order to study the coagulation of ZnO aerosol particles, which is a main composition in EAF dust, the experiment of aerosol coagulation with the ZnO particles generated from the oxidation of Zn vapor was carried out. According to the analysis, the number of the particles decreases with time, which leads to the decrease of the particle concentration, and this is regarded as the result of the coagulation.

The theory of coagulation in turbulence was introduced. Considering the particle in a shear flow, the Saffman and Turner's model has been the popular theory to analyze the coagulation process.

$$N_{ij}^0 = 1.294(a_i + a_j)^3 \left(\frac{\varepsilon}{\nu}\right)^{\frac{1}{2}} n_i n_j \quad (1)$$

In Saffman and Turner's analysis, however, no effect of hydrodynamic interaction and interparticle forces were considered. Higashitani K. developed a kinetic theory of shear coagulation for particles in a viscous fluid, and the collision frequency N_{ij} is given by

$$N_{ij} = \alpha \left[1.294(a_i + a_j)^3 \left(\frac{\varepsilon}{\nu}\right)^{\frac{1}{2}} n_i n_j \right] \quad (2)$$

Note that, equation (2) differs from the equation (1), only in the factor α , which is the coagulation coefficient of shear coagulation by which the effects of the hydrodynamic interaction and the London-van der Waals force are represented.

In order to investigate the coagulation performance of aerosols in an agitated vessel, experiments with the aerosol generated by burning the incense sticks, were carried out. The aerosol samples were collected and observed by SEM (Figure 1). The range of the initial size distribution was 0.017-0.43 μm and the CMD was estimated as 0.075 μm . Statistical data indicate that during the coagulation process, with the increase of the coagulation time and agitation speed, size distribution would change, and more large particles appeared due to the coagulation.

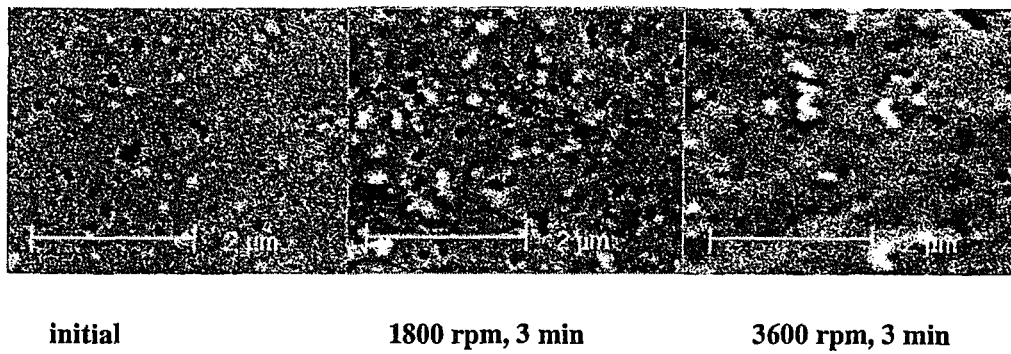


Figure 1 SEM observation under different conditions

The data in voltage values, obtained by light scattering system and indicating the change of number concentration of aerosol, were treated with analysis by the assumption that the number concentration and voltage value have the linear relationship. According to a simple solution to the kinetic equation of Brownian coagulation

for nearly monodisperse aerosol, $\frac{N_0}{N} - 1 = KN_0 t$, the experimental result of Brownian coagulation (without

agitation) was treated with and the linear relation between $N_0 / N - 1$ and time for Brownian coagulation was obtained, but for the results of experiments under agitation, this relationship is not linear (Figure 2). Contrarily,

according to the Smoluchowski's theory, the relationship like $\ln \frac{N_0}{N} = \frac{4V}{\pi} \frac{du}{dt} t$, was obtained, and based on this

theory, the data were treated with and the linear relation between $\ln(N_0 / N)$ and time for coagulation in shear flow was obtained, but for Brownian coagulation, this relationship is not linear (Figure 3).

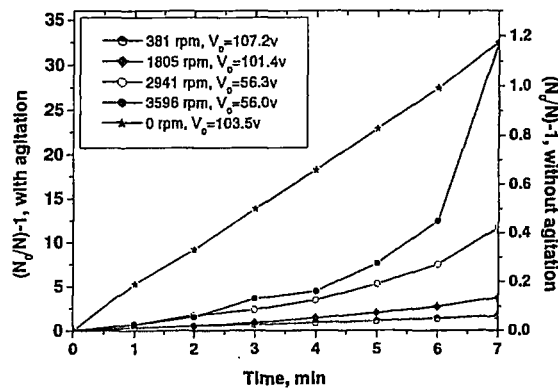


Figure 2 Relation between $\ln(N_0/N)$ and time

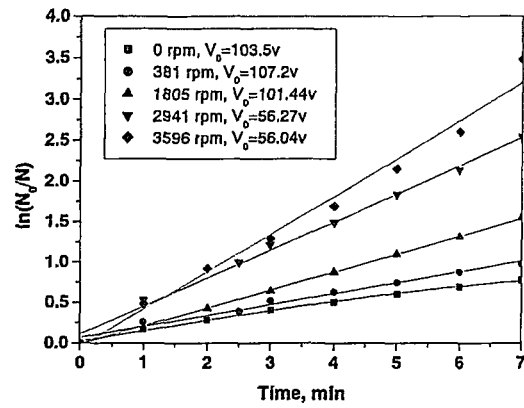
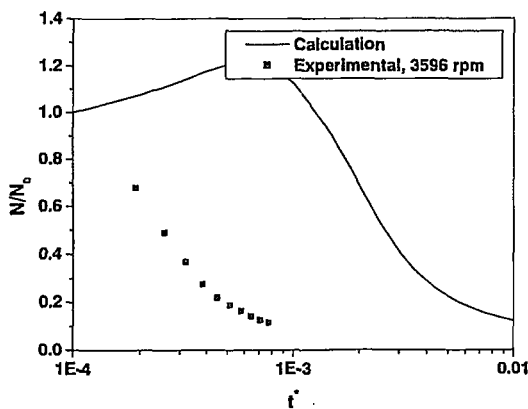


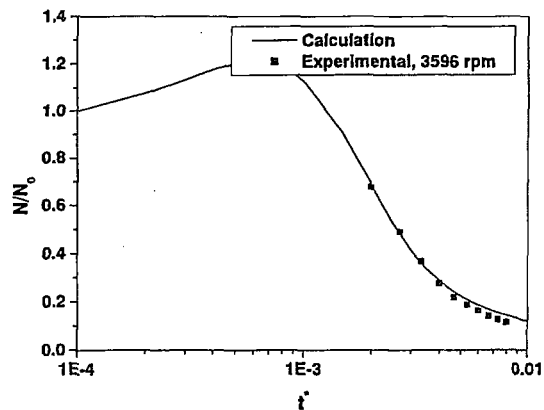
Figure 3 relation between $N_0/N - 1$ and time

The experiment on calibration for the conversion of voltage values into real number concentration was carried out. The result confirmed that the relationship between the voltage values and the real number concentrations is linear, which justified the result obtained above.

The theoretical number decay curve with time based Higashitani's model was obtained by PSG method. Experimental results treated with based on Saffman and Turner's theory, were compared with theoretical calculation which was based on Higashitani's theory. The gaps between experimental data and calculation expressed by α which is larger than unity indicate that the interaction of particles in this study is positive to the coagulation rate (shown in Figure 4 (a)).



(a)



(b)

Figure 4 Comparison of the experimental data of incense aerosol with theory

According to Higashitani's model, Hamaker constant, which indicates the effect of London-van der Waals force,

was estimated and the fitting curve was obtained (Figure 4(b)). The average value of Hamaker constant was estimated as 3.66×10^{-20} J, which is in the reasonable order of 10^{-20} - 10^{-19} J.

To confirm the effect of London-van der Waals force on the aerosol coagulation, new experiments of aerosol coagulation in an agitated vessel, were carried out with latex particles which are monodisperse. The sizes of the latex particles are 0.458 and 0.309 μm in diameter, respectively. In this study, the effect of the deposition was considered. The experiments under the number concentration as 20-100 $1/\text{cm}^3$ were carried out, to estimate the deposition coefficients. The experiments under the number concentration as high as $1-2 \times 10^5$ $1/\text{cm}^3$ were carried out. Taking the effect of deposition into account, the data were treated with to investigate the coagulation process only. There are some gaps between the experimental data based on Saffman and Turner's theory and the theoretical calculation based on Higashitani's model(Figure 5 (a)).

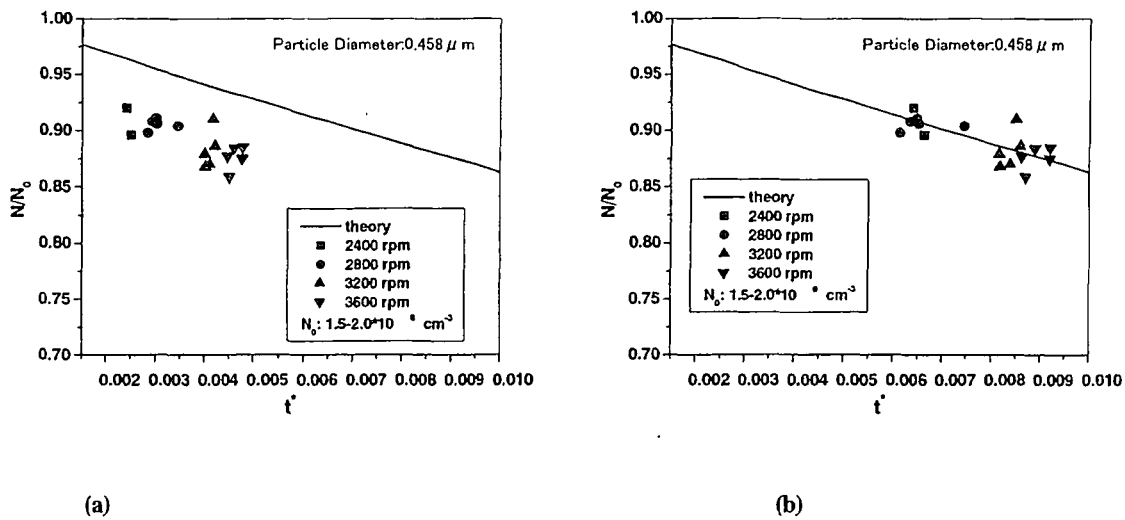


Figure 5 Comparison of experimental results with theory (latex aerosol, 0.458 μm)

Fitting the experimental data with coagulation coefficient, α , to agree with theoretical calculation (Figure 5 (b)), Higashitani's model was applied to consider the London-van der Waals force and the Hamaker constant was estimated. For latex particles of 0.458 μm and 0.309 μm in diameter, the average value of Hamaker constants are 8.3×10^{-20} J and 11.02×10^{-20} J, respectively, close to the theoretical value, which means the experimental results in this study is reasonable.

The significance of this study is to understand the detailed features of the aerosol coagulation under turbulent condition and maybe some useful information can be offered for the future application in dust collecting technology.

論文審査結果の要旨

空気中の浮遊粒子（エアロゾル）は一般に 1nm から 100 μ m の範囲に分布するが、2.5 μ m 以下の粒子は 1 日から 1 週間大気中に懸濁し、その間 10 から 1000km の距離を移動する。そのため地球規模の環境問題の原因になるとともに、人体に対しては深刻な肺疾患を引き起こす要因にもなる。一方、電炉工場から排出される微細なダストには鉄スクラップからの亜鉛が 20%以上含まれ、その回収が亜鉛資源の確保のために重要となっている。エアロゾル粒子を回収・除去するためには、凝集に関する知見が必要である。本論文は、工業起源エアロゾルの凝集速度に関する基礎研究であり、全編 7 章からなる。

第 1 章は緒論であり、本研究の背景と目的について述べた。

第 2 章では、電気製鋼炉からのダスト生成と ZnO 粒子の凝集に関する予備実験について述べた。

第 3 章では、乱流凝集理論の詳細について述べた。乱流衝突に関する Saffman-Turner 理論に粒子間の London-van der Waals 力を加えた理論（液中粒子の凝集解析に用いられている）とともに、粒子径分布を離散的に扱う Particle-Size-Grouping 法に基づく数値計算方法について解説した。

第 4 章では、線香の煙をエアロゾルのモデルとした乱流凝集試験を攪拌槽内で行った。線香の煙を攪拌槽内で凝集させ、その粒子数および粒子径分布の時間変化を(1)走査型電子顕微鏡(SEM)、(2)スリットから照射した光の粒子による散乱強度の測定、の 2 つの方法により測定した。まず(1)の方法により、0.017-0.43 μ m の領域における粒子径分布の変化を求め、極微細粒子の凝集速度とその攪拌強度依存性を検討した。ついで、(2)の方法により、比較的大きな粒子(>0.3 μ m)による散乱光強度の経時変化を種々の攪拌強度で測定した。凝集曲線の傾向は、攪拌強度が小さい場合にはブラウン凝集、攪拌強度が大きい場合には乱流凝集の速度論と一致した。

第 5 章では、粒子間相互作用力を考慮した凝集理論によって凝集速度を詳細に検討した。(3)パーティクルカウンター(最小測定粒径 0.3 μ m)を用いて、(2)の散乱光強度から粒子濃度を求める検量線を得た。つぎに(3)によって得た 0.3 μ m 以上の初期粒子径分布を、(1)による粒子径分布と接続して、全領域の初期分布を算出した。凝集理論を用いて全粒子数の経時変化を算出し、それより 0.3 μ m 以上の範囲の粒子濃度の経時変化を抜き出した。これを実測した粒子濃度変化と比較すると、粒子間相互作用を考慮しない理論からは、実測値より約 10 倍遅い凝集速度が得られた。両者を一致させるためには、London-van der Waals 力のパラメータである Hamaker 定数を $(1.20-7.88) \times 10^{-20}$ J に設定する必要がある。この値は一般的な物質の Hamaker 定数のオーダーである 10^{-20} - 10^{-19} J の範囲にある。

第 6 章では、粒子径の均一な PSL 粒子のエアロゾル (0.309, 0.458 μ m) を用いて、乱流凝集実験を行った。エアロゾルは粒子懸濁液をキャピラリーから空気とともに高速で噴霧する方法によって生成させた。壁付着を考慮した凝集速度の解析を行って得た理論値と実験値の比較によって求めた Hamaker 定数は $(7.29-15.6) \times 10^{-20}$ J となり、PSL の文献値 7.9×10^{-20} J とほぼ一致した。

第 7 章は結論である。

以上、要するに本論文は、環境問題と密接に関わる工業起源のエアロゾルの乱流凝集を、これまで十分考慮されなかった London-van der Waals 力を導入した凝集理論によって検討したもので、今後のエアロゾル凝集の研究の進展のために有益な知見を示している。

よって、本論文は博士(工学)の学位論文として合格と認める。